

強磁性微粒子の磁気異方性計測と磁気特性の研究

著者	指宿 隆弘
号	2978
発行年	2002
URL	http://hdl.handle.net/10097/8250

氏 名	いぶ すき たか ひろ
指 宿	隆 弘
授 与 学 位	博士 (工学)
学 位 授 与 年 月 日	平成 15 年 3 月 24 日
学 位 授 与 の 根 拠 法 規	学位規則第 4 条第 1 項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 応用物理学専攻
学 位 論 文 題 目	強磁性微粒子の磁気異方性計測と磁気特性の研究
指 導 教 官	東北大学教授 島田 寛
論 文 審 査 委 員	主査 東北大学教授 島田 寛 東北大学教授 宮崎 照宣 東北大学教授 梶谷 剛 東北大学助教授 北上 修

論文内容要旨

第 1 章 背景と目的

微粒子材料の磁気物性研究やその集合体である磁気記録媒体の開発研究には、試料を構成する微粒子の磁気異方性を知ることが重要である。特に、微粒子が直径数 10nm 以下の場合には、表面、界面の存在が磁気異方性に大きく影響するため、バルクとは異なる性質を示す可能性がある。したがって、試料を構成する微粒子そのものの磁気異方性を測定することは、材料研究及び開発の観点から極めて重要である。3 次元的にランダムに分散したナノ微粒子集合体試料に対する従来の磁気異方性測定では、粒子間の磁氣的相互作用を無視し、更に磁化反転モード、ラマー周波数など多くの仮定の下に解析が行われてきた。こうした状況を考えると、今後磁性微粒子を用いた高密度メモリー材料の開発を促進していくためには、より信頼性の高い磁気異方性評価法が是非とも必要になる。そこで本研究では、従来の磁気異方性評価法の中から磁化反転モードの仮定を必要としない飽和漸近則に着目し、この方法で曖昧にされてきた幾つかの課題を克服することで、より信頼度の高い磁気異方性評価法に発展させることを第一の目的にした。そしてこの評価法により実用磁気記録材料である微粒子、微粒子分散型グラニューラー記録媒体、磁気相分離型薄膜媒体など一連の磁気異方性を決定し、磁化挙動との相関を明らかにすることを第二の目的とした。

第 2 章 実験方法

本研究に用いた $\text{Co}_{100-x}\text{Pt}_x$ ($0 < x < 40$) 微粒子は、微粒子用に自作した気相凝縮用直流マグネトロンスパッタ装置を用いて作製した。粒子サイズはスパッタガス種及び圧力により 10 ~ 40 nm の範囲で制御した。また微粒子分散型 $\text{Co}_{80}\text{Pt}_{20} / \text{SiO}_2$ グラニューラー膜は、高周波マグネトロンスパッタ法により作製した。両試料共に hcp 構造と fcc 構造の混相であったため、各 X 線回折積分強度を計算し両相の体積分率を正確に決定した。磁性粒子の構造観察は透過及び走査型電子顕微鏡により行い、磁気測定には振動試料型磁力計及び磁化率測定装置を

用いた。

第 3 章 飽和漸近則の精度とその向上

本章では、従来曖昧にされてきた飽和漸近則の問題点を取り上げ、それらを解決することにより信頼性のある磁気異方性評価法に発展させることを狙いとした。具体的には、実験的に得られた磁化曲線のどの範囲に飽和漸近則を適用すれば適正に磁気異方性を評価できるかということ、そして微粒子集合体試料における粒子間双極子相互作用の取り扱いの問題である。

高磁場下の飽和領域近傍に於いて磁気モーメントはほぼ磁場方向に揃う。磁場と磁化のなす角を $\theta \approx 0$ と近似すれば磁化率は $\chi = \alpha K_{\text{eff}}^2 / H^3$ (K_{eff} : 磁気異方性定数, 一軸異方性 $\alpha = 0.53$, 立方異方性 $\alpha = 0.15$)となり、磁化率測定から異方性を決定できる。有限温度では熱揺らぎ等に起因する $1/H^2$ 項が加わり、磁化率は $\chi = \alpha K_{\text{eff}}^2 / H^3 + \gamma / H^2$ (γ : 熱揺らぎ, スピンキャンテイングにより決まる定数)となる。したがって適正な異方性評価を行うには、可能な限り広い磁場範囲に飽和漸近則を適用して $1/H^2$ 及び $1/H^3$ 項を正確に分離する必要がある。具体的な計算と実験より、非可逆磁化過程が関与しない広い磁場範囲 $H \geq H_K$ (3次元ランダム配向の規格磁化では $0.9 \leq M/M_S < 1$)に適用することにより、 $1/H^2$ 及び $1/H^3$ 項を良好に分離できることを確認した。一方、以上のように磁場範囲を広くとると、低磁場側で $\theta \approx 0$ という角度近似のずれを生じる。この近似誤差を数値計算した結果、飽和漸近則からの測定値は磁気異方性の値に依存せず真値よりも17%過大評価され、したがって飽和漸近則より磁気異方性を決定する際、この近似誤差の補正を行う必要がある。数値計算結果より2次元ランダム配向の場合は4%である。また微粒子集合体の場合、粒子間の双極子相互作用が問題になるが、異方性磁界 $H_K \geq$ 平均場 $4\pi p M_S / 3$ (p : 粒子体積充填率)の条件下に於いて正しく磁気異方性を決定できることを数値計算により確認した。以上に述べた手続きを基に、結晶磁気異方性が既知であるバルクFe, Co, Ni多結晶材料に飽和漸近則を適用した。その結果、単結晶試料で得られた磁気異方性に非常に良く一致することが確かめられた。

第 4 章 Co-Pt 微粒子を用いた飽和漸近則の測定精度とその磁気特性

本章では、第3章に述べた飽和漸近則適用の手続きに従い、磁気記録材料として重要なhcp Co-Pt合金微粒子の磁気異方性を測定した。参照用に作製したhcp-Co-Pt単結晶膜の磁気異方性を測定し、飽和漸近則から決定した微粒子磁気異方性との比較をおこなった。その結果、Co-Pt粒子は10 nm程度の微小サイズにおいても 4×10^6 erg/cc (Pt 25 at.%)という高い磁気異方性を維持し、単結晶膜の値に非常に良く一致することがわかった。次に測定から得られた磁気異方性値を用いて、Co-Pt微粒子の磁化曲線を理論計算から再現することを試みた。各粒子の磁化がコヒーレントに振舞うことを前提に、粒子間双極子相互作用及び熱揺らぎを取り込んで磁化曲線を数値計算した。その結果はほぼ完全に実験結果を再現し、このことから、粒子径20 nm以下のCo-Pt粒子は理想的なStoner-Wohlfarth粒子として振舞うことが明らかになった。

第 5 章 飽和漸近則を用いた実用材料の磁気異方性測定

本章では、これまで磁気異方性の決定が困難とされてきた 3 次元ランダム配向 Co-Pt/SiO₂ グラニューラー膜、2 次元ランダム配向 CoCrPt 面内記録媒体に対し、本研究で発展させた飽和漸近則を適用して磁気異方性の決定を試みた。グラニューラー膜中の Co-Pt 微粒子の異方性は、第 4 章に述べた Co-Pt 微粒子粉体の値と良く一致した。この結果は Co-Pt 微粒子の異方性が周囲のマトリクス材に影響されないことを示しており、今後のマトリクス材選定にあたり重要な情報となる。また Co-Pt 粒子の有効磁気異方性が hcp/fcc 体積分率と明確な相関を持つことを実証した点も、今後の記録材料開発にあたり重要な指針となる。一方、CoCrPt 面内記録媒体の場合には、磁化容易軸は面内に 2 次元ランダム分散しており、Sucksmith – Thompson (ST) 法により正確に異方性を決定できる。飽和漸近則に基づく異方性測定値は ST 法のそれと一致し、飽和漸近則に基づく異方性評価の妥当性を示している。以上の結果から、磁気トルク測定や ST 法が適用できないような様々な磁化容易軸分散に対し、飽和漸近則が極めて有効な異方性評価法であることを示した。

第 6 章 従来の磁気異方性測定法と飽和漸近則の比較

本章では、本研究で発展させた飽和漸近則による磁気異方性を、従来の手法 (磁気粘性、回転ヒステリシス損失、特異点検出) による測定結果と比較した。評価に用いた材料は、Co-Pt 微粒子、Co-Pt/SiO₂ グラニューラー膜、CoCrPt 面内記録媒体である。磁気粘性による磁気異方性測定では、粒子サイズの決定が困難な CoCrPt ハードディスク膜や粒子サイズが大きいために非 3 軸回転モードとなる試料では、信頼できる評価結果を得ることができなかった。回転ヒステリシス損失による磁気異方性測定では、静磁気相互作用や異方性分散により測定値に大きな誤差が生じることが示された。特異点検出による方法では、困難軸方向の飽和磁界 H_S の検出に非常に高感度な磁気測定を必要とし、微粒子集合体の磁気異方性測定には適さないことを示した。

以上から本研究で発展させた飽和漸近則に基づく磁気異方性評価法が、測定の信頼性及び汎用性に優れていることが明らかになった。

第 7 章 総括

本論文では、微粒子集合体からなる実用材料の磁気異方性測定を目的として、飽和漸近則の適用磁場範囲、角度近似誤差及び静磁気相互作用が測定結果に与える影響を詳しく検討、解析することにより、測定の信頼性を向上させることができた。この方法は従来の方法に比べて高精度かつ汎用性に優れることを、実用段階にある微粒子材料の磁気異方性測定に適用することにより明らかにした。

論文審査結果の要旨

本論文は、強い磁場中の強磁性体を示す磁化曲線を幾つかのパラメータに分離して記述する飽和漸近則が、特定の磁化過程モデルや試料の形態を問わない利点をもつことに注目し、物理的根拠に基づく解析方法により直径が 10 nm 以下の微粒子集合体を持つ磁気異方性の測定を行った研究成果をまとめたもので、全編 7 章よりなる。

第 1 章は序論である。

第 2 章では、測定対象とした強磁性微粒子およびグラニューラー薄膜の作成方法、その結晶構造、磁気測定法、解析方法、数値計算方法を述べている。さらに、従来の磁気異方性測定法についてその利点と欠点を考察している。

第 3 章では、飽和漸近則を磁気異方性計測に適用する際の問題点を、Fe, Ni, Co のバルク試料を使って実験的に検証し、定常的な誤差の物理的解釈と補正方法を確立した。また微粒子集合体に適用した場合の静磁氣的相互作用による誤差の取り扱いについて考察している。

第 4 章では、Co-Pt 微粒子試料を作成し、飽和漸近則によって磁気異方性定数を決定した。Co-Pt 微粒子は、fcc と hcp の結晶相が混在するため、その磁気特性を決定する要因が把握されていなかったが、磁気異方性と結晶相の体積率が明瞭な相関を持つことを明らかにし、また磁気異方性の測定値によって微粒子の抗磁力が定量的に予測できることを示した。

第 5 章は、有望な磁気記録薄膜材料である Co-Pt/SiO₂ グラニューラー薄膜中の Co-Pt 微粒子およびハードディスクに用いられている Co-Cr-Pt 薄膜の磁気異方性を測定し、SiO₂ 中の Co-Pt 微粒子の磁気異方性は、第 4 章で明らかにした磁気異方性とよく一致すること、ならびに実用材料である Co-Pt-Cr 薄膜の評価にも有効であることを示した。

第 6 章は、これまで磁気記録薄膜材料に用いられてきた、各種の磁気異方性測定方法を第 4 章の試料に適用し、その測定プロセス、測定精度を飽和漸近則と比較することによって、飽和漸近則の実用性を明らかにした。

第 7 章は結論である。

以上要するに本論文は、飽和漸近則を高精度化することによって、磁気記録媒体材料である強磁性微粒子の磁気異方性を精度よく実測する方法を確立したもので、応用物理学の発展に寄与している。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。